

Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)

International application number: PCT/JP05/000349

International filing date: 14 January 2005 (14.01.2005)

Document type: Certified copy of priority document

Document details: Country/Office: JP
Number: 2004-010844
Filing date: 19 January 2004 (19.01.2004)

Date of receipt at the International Bureau: 10 February 2005 (10.02.2005)

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b)



World Intellectual Property Organization (WIPO) - Geneva, Switzerland
Organisation Mondiale de la Propriété Intellectuelle (OMPI) - Genève, Suisse

日本国特許庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日 2004年 1月19日
Date of Application:

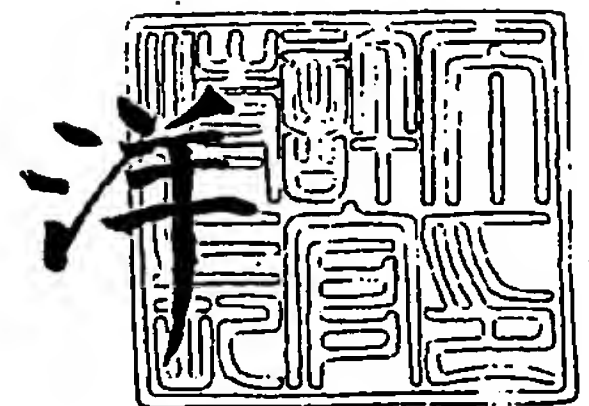
出願番号 特願2004-010844
Application Number:
[ST. 10/C]: [JP2004-010844]

出願人 パイオニア株式会社
Applicant(s):

2004年 8月17日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

小川



出証番号 出証特2004-307385C

【書類名】 特許願
【整理番号】 58P0275
【あて先】 特許庁長官 殿
【国際特許分類】 H05B 33/22
【発明者】
 【住所又は居所】 埼玉県鶴ヶ島市富士見 6 丁目 1 番 1 号 パイオニア株式会社 総
 合研究所内
 久保田 広文
 【氏名】
【特許出願人】
 【識別番号】 000005016
 【氏名又は名称】 パイオニア株式会社
【代理人】
 【識別番号】 100083839
 【弁理士】
 【氏名又は名称】 石川 泰男
 【電話番号】 03-5443-8461
【手数料の表示】
 【予納台帳番号】 007191
 【納付金額】 21,000円
【提出物件の目録】
 【物件名】 特許請求の範囲 1
 【物件名】 明細書 1
 【物件名】 図面 1
 【物件名】 要約書 1
 【包括委任状番号】 9102133

【書類名】 特許請求の範囲

【請求項 1】

基板上部に形成される薄膜素子のための保護膜であって、水素含有率が 30 at % 以上であることを特徴とする保護膜。

【請求項 2】

前記保護膜は、SiN、SiO、SiON、SiCもしくはSiCN系のものまたはダイヤモンドライクカーボン (DLC) である請求項 1 に記載の保護膜。

【請求項 3】

基板上に、少なくとも第一電極、有機発光層、および第二電極が形成されてなる有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記有機エレクトロルミネッセンス素子を覆うように、水素含有率が 30 at % 以上である保護膜を形成したことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 4】

前記保護膜は、SiN、SiO、SiON、SiCもしくはSiCN系のものまたはダイヤモンドライクカーボン (DLC) である請求項 3 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 5】

基板上に、少なくとも第一電極、有機発光層、および第二電極が形成されてなる有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法において、前記有機エレクトロルミネッセンス素子を覆うように、水素含有率が 30 at % 以上である保護膜を CVD 法またはスパッタ法によって形成することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

【請求項 6】

CVD 法が、プラズマ CVD 法である請求項 5 記載の製造方法。

【書類名】明細書

【発明の名称】保護膜および有機EL素子

【技術分野】

【0001】

本技術は、例えば、有機エレクトロルミネッセント素子（以下、「有機EL素子」と称する。）等のデバイス用の保護膜、ならびにこのような保護膜を形成したデバイスに関するものである。

【背景技術】

【0002】

有機EL素子は、比較的低電圧で駆動でき、高輝度でバックライトを必要とせず、軽量のフラットパネルディスプレイを作製できることから、近年注目されている。

【0003】

この有機EL素子は、例えば、基板上に形成された対向する第一電極と第二電極間に、有機層を挟持する構成のものである。

【0004】

しかしながら、有機EL素子は、大気中の水分や酸素が吸着することによって、例えば、発光素子中に、黒い斑点状のダークスポットが発生し、発生したダークスポットが成長して、有機EL素子の寿命を低下させるという問題がある。

【0005】

このような水分や酸素から有機層を保護するために、従来、乾燥剤を収納した封止缶と呼ばれる囲繞体で、有機EL素子の封止を行っている。しかしながら、このような封止缶を形成するとディスプレイパネルの厚みが大きくなってしまふ。このため有機EL素子を、薄膜で封止しようとする試みがなされている。

【0006】

このような封止膜としては、例えば、特許文献1には、プラズマCVD法により形成される、 SiO_xC_y ($x=0.1\sim 1$ 、 $y=0.1\sim 1$) の組成を有し、水素含有率が30at%以下である封止膜が開示されている。

【0007】

また、特許文献2には、無機EL素子の発光層の上部に形成される絶縁層としてではあるが、プラズマCVD法により形成した $\text{Si}_x\text{N}_y\text{O}_z:\text{H}$ 膜を、水素含有量 $2\times 10^{22}\text{ atoms/cm}^2$ 以下として形成することが提案されている。これは、膜中の水素が多いと素子の駆動時に水素の気泡が発生するためであると述べられている。

【特許文献1】特開2001-68264号公報

【特許文献2】特開平2-189891号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0008】

特許文献1または2におけるように膜の水素含有量を少なくすると、確かに膜質は良くなるが、膜応力が大きくなってしまふ。このため膜を厚膜に成膜できず、また有機層間または有機層と電極間等で剥離等の問題が生じる虞れがあり、信頼性に欠けるものとなってしまふものであった。

【0009】

また、プラズマCVD法は、例えば、スパッタ法、熱CVD法や触媒CVD法などと比較すると低温で成膜が可能で、デバイスの段差被覆性（ステップカバーレッジ）の良好なものであるが、逆にこれらの方法と比較して得られる膜中に含まれる水素量は多いものとなる。このため、上記特許文献1におけるように、水素含有率が30at%以下である膜を成膜しようとする、ある程度成膜温度を高めるかRFパワーを上げなければならない。一方、有機EL材料は、一般に耐熱性が低く、上記のような水素含有量の低い保護膜を形成する際の温度によって、有機EL材料が失活する虞れがあり、技術的な困難性を伴うものであった。

出証特2004-3073850

【0010】

従って、上述したような従来技術における問題を解決する改良された保護膜、このような保護膜を用いてなる有機EL素子およびその製造方法を提供することを課題とする。

【課題を解決するための手段】

【0011】

上記課題を解決する技術は、まず(1)基板上部に形成される薄膜素子のための保護膜であって、水素含有率が30at%以上であることを特徴とする保護膜である。

【0012】

また、(2)前記保護膜が、SiN、SiO、SiON、SiCもしくはSiCN系のものまたはダイヤモンドライクカーボン(DLC)である(1)記載の保護膜が示される。

【0013】

上記課題を解決する技術は、また(3)基板上に、少なくとも第一電極、有機発光層、および第二電極が形成されてなる有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記有機エレクトロルミネッセンス素子上部に、水素含有率が30at%以上である保護膜を形成したことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子である。

【0014】

また、(4)前記保護膜は、SiN、SiO、SiON、SiCもしくはSiCN系のものまたはダイヤモンドライクカーボン(DLC)である(3)記載の有機エレクトロルミネッセンス素子が示される。

【0015】

さらに上記課題を解決する技術は、(5)基板上に、少なくとも第一電極、有機発光層、および第二電極が形成されてなる有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法において、前記エレクトロルミネッセンス素子上部に、水素含有率が30at%以上である保護膜をCVD法またはスパッタ法によって形成することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法である。

【0016】

また(6)上記CVD法が、プラズマCVD法である(5)記載の製造方法が示される。

【発明を実施するための最良の形態】

【0017】

以下に、本技術を、図面を参照しつつ詳細に説明する。

【0018】

開示される第一の技術は、基板上部に形成される薄膜素子のための保護膜であって、水素含有率が30at%以上であることを特徴とする保護膜である。

【0019】

この保護膜の水素含有率としては、好ましくは30~40at%である。

【0020】

従来、保護膜は、その膜より発生するガス等によって、素子機能層や電極層が悪影響を受けるため、又は外部から侵入する水分をバリアするバリア性の点から考慮して、膜中に含まれる水素は、少ない程好ましいと考えられていた。しかしながら、我々の行った研究によれば、例えば、以下に述べるような有機EL素子において、有機層上部に形成する保護膜として、このような水素含有率が30at%以上であるような保護膜を形成しても、その保存結果において、特段の問題点も生じなかった。一方で、このような水素含有率であると、その成膜は、例えばプラズマCVD法によれば、成膜温度条件をかなり低い温度としても可能であり、有機発光材料等の比較的熱に弱い材料の保護膜としても適用可能である。また、水素含有量が30at%以上と比較的高いものであると、保護膜の膜応力も小さく、厚膜、例えば、0.5μm以上、好ましくは1~5μmのものを成膜可能であり、例えば、被覆しようとする下部素子構造体がかんりの段差を有するものであっても追従性よく被覆することができる。またパーティクルやピンホールを埋め込むことも可能であ

る。このため、例えば、当該保護膜を他の膜、例えば、金属膜等と組み合わせなくとも単一膜によって、十分な機能を発揮し得るものとなる。

【0021】

このため、有機EL素子その他の電子デバイスにおける薄膜積層体の上部に形成される保護膜として、好適に使用できるものである。

【0022】

本技術に係る保護膜の組成としては、上記水素含有率以外特に限定されるものではなく、無機膜、有機膜のいずれであってもよいが、例えば、SiN系、SiO系、SiON系、SiC系、SiCN系のような珪素と、酸素、炭素および窒素の少なくともいずれかの元素を含む組成またはダイヤモンドライクカーボン(DLC)であることが、防湿性等が良好な信頼性の高い安定な被膜を形成できることから望ましい。

【0023】

このような保護膜は、例えば、熱CVD、プラズマCVD法、触媒CVD法などのような各種CVD法や、スパッタリング法のような公知の方法によって形成が可能である。

【0024】

CVD法における場合には、得られる膜中の水素含有率は、例えば、SiH₄等のような原料ガスを、N₂、NH₃、N₂O等の他のガスとの、流量比もしくは分圧を、またはRFパワー、基板温度を適宜調整することによって所望のものとすることができる。また、スパッタリング法による場合には、例えば、ターゲット材料としてのSi、SiC等とは別途に、反応系に水素ガスやNH₃等の水素源を導入することによって所望のものとすることができる。

【0025】

保護膜の製造方法としては、上記したような方法のうち、特に、プラズマCVD法を用いることが好ましい。プラズマCVD法によれば、本技術におけるような高い水素含有率の膜は、成膜温度条件を、例えば、120℃以下、より好ましくは70～110℃といった条件として成膜が可能であり、有機EL材料のような耐熱性の低い材料に対しても、損傷を与えることなく被覆形成可能である。

【0026】

図1は、上記第1の技術に係る保護膜を適用した、第2の技術に係る有機EL素子の一例を示す概略断面図である。

【0027】

図1に示す有機EL素子は、基材10上部に、第一電極11、正孔注入輸送層12、有機機発光層13、第二電極14が順次積層され、その上部に有機EL素子全体を覆って、上記したような所定の水素含有率を有する保護膜15が形成されている。

【0028】

なお本第2の技術に係る有機EL素子の構造としては、上記図1に示す例におけるものに限定されるものではなく、公知の種々の構成のものとすることができ、例えば、有機機発光層を単独で設け、この発光層と第二電極との間に電子注入輸送層を設ける構成、正孔注入輸送層と電子注入輸送層の双方を設ける構成、あるいは正孔注入輸送層を発光層と混合した構成等とすることができる。

【0029】

第2の技術に係る有機EL素子においては、上記したような水素含有率30at%以上という水素組成比の高い保護膜を有するため、有機機発光層を外部の酸素、水分等より十分に保護することができ、発光寿命の優れた有機EL素子とすることができる。

【0030】

このような有機EL素子において、保護膜15の厚さとしては、特に限定されるものではないが、例えば、0.5μm以上、好ましくは1～5μmとすることが望ましい。このように厚膜としても、膜応力が低いために、層間剥離、発光異常等の問題を生じることなく、高い防湿性あるいはガスバリア性を付与できるため、有機EL素子の良好な製品性能を長期間にわたり安定して発揮させることができることとなる。

【0031】

なお、この第2の技術に係る有機EL素子において、保護層以外の基材および各積層体を構成する材料としては、特に限定されるものではなく、公知のいずれのものを用いることも可能である。

【実施例】

【0032】

以下、本発明を実施例に基づき、具体的に説明する。

【0033】

図1に示すような構造を有する有機EL素子を作成した。

【0034】

保護膜15としては、 SiH_4 および N_2 を原料ガスとして用いプラズマCVD法により、 100°C の成膜温度（基板表面温度）条件にて厚さ $3\mu\text{m}$ の SiN 膜を形成した。なお、得られた保護膜の水素含有率は $37\text{at}\%$ であった。

【0035】

得られた有機EL素子を用いて、有機ELディスプレイを作製し、常温（ 22°C ）、高温（ 100°C ）域および高温高湿（ 60°C 、 $95\%\text{RH}$ ）下における発光実験を行った。この結果、500時間の試験期間において、いずれの温度域においてもELディスプレイの輝度の低下、消光などの異常は認められず、本技術に係る保護膜の高い信頼性、および有機EL素子の高性能性が示された。

【図面の簡単な説明】

【0036】

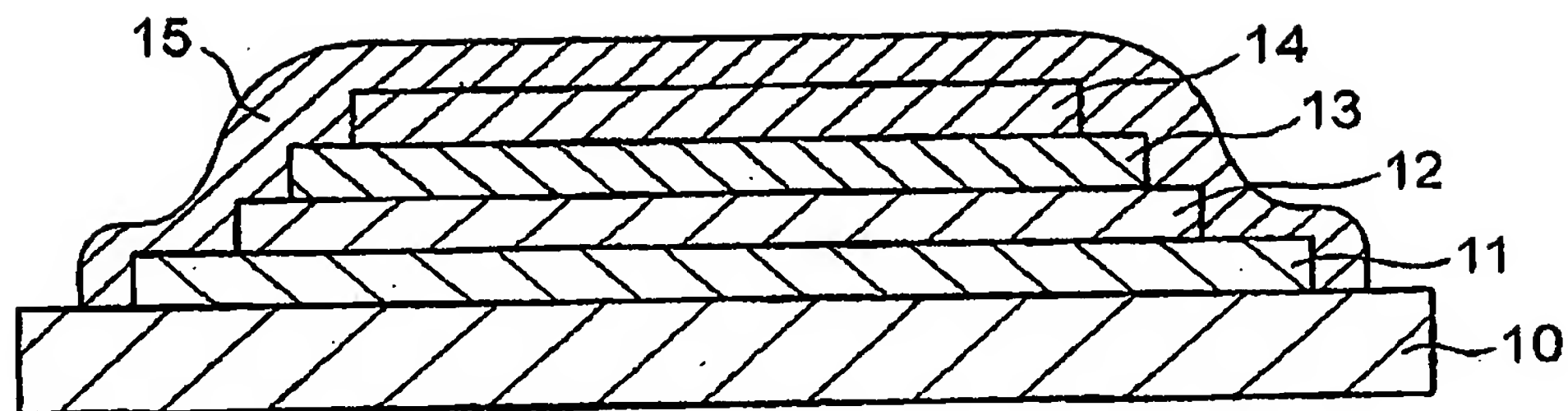
【図1】本技術に係る保護膜を適用した有機EL素子の一例を示す概略断面図である。

【符号の説明】

【0037】

- 10 基材
- 11 第一電極
- 12 正孔注入輸送層
- 13 有機発光層
- 14 第二電極
- 15 保護膜

【書類名】 図面
【図 1】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 有機EL素子等のデバイスの保護膜として、信頼性の高い、厚膜の保護膜を提供する。

【解決手段】 基板上部に形成される薄膜素子の上部に形成される保護膜であって、水素含有率が30at%以上であることを特徴とする保護膜である。

【選択図】 図1

認定・付加情報

特許出願の番号	特願2004-010844
受付番号	50400082567
書類名	特許願
担当官	第四担当上席 0093
作成日	平成16年 1月20日

<認定情報・付加情報>

【提出日】 平成16年 1月19日

特願 2004-010844

出願人履歴情報

識別番号

[000005016]

1. 変更年月日
[変更理由]
住所
氏名

1990年 8月31日
新規登録
東京都目黒区目黒1丁目4番1号
パイオニア株式会社